19日本国特許庁

公開特許公報

⑪特許出願公開

昭52—109499

⑤ Int. Cl².C 01 C 1/04 ·

識別記号

每日本分類15 L 11115 L 12

庁内整理番号 7451—41 7451—41 ③公開 昭和52年(1977)9月13日

発明の数 2 審査請求 未請求

(全 12 頁)

・ のアンモニアの高温高圧合成方法及び装置

②特 願 昭52-24944

22出 願昭52(1977)3月9日

優先権主張 301976年3月10日33イギリス国 309452/76

 デンルンズ・ヴエイ30

⑦発 明 者 エリツク・アンドレアス・ガム デンマーク国フムレベグ・テグ ルゴルツ・ヴエイ911

⑪出 願 人 ハルドール・トプサー・アクチ エゼルスカベツト デンマーク国リングビー・ニー メレベエイ55

⑭代 理 人 弁理士 江崎光好 外1名

明細 審

1. 発羽の名称 アンモニアの高温高圧合成方法及 び装置

2. 特許請求の範囲

- 2. 第3供給流が他の供給流と合体される前に、

転化装置の外郭を冷却する、特許請求の範囲 第1項記載の方法。

- 3. 中間熱交換器を経出した供給流を外郭冷却 用に用いる、特許請求の範囲第1項記域の方 法。
- 供給流が転化装置の軸上の位置で合体される、特許請求の範囲第1項、第2項乂は第5項記載の方法。
- 5. 合体供給流を第1触媒床の外側に返移行させ、次いで第1触媒床の放射状態中心方向に (半径の中心方向に)通過せしめる、特許請求の範囲第4項記載の方法。
- 6. 転化装置外郭;環状形を有し、共通細上で一直線となるように配置され、合成ガスプロセス流を順次通過せしめる第1触媒尿及び第2触媒床;上記触媒床間の合成ガスを間接熱交換により冷却するための無交換器;及び各種合成ガス流を連絡させるための地路を提供するために、触媒床の周囲及び転化装置外郭の内部に環状空間を形成せしめる邪雁板及び

円間板を包含する、アンモニアの高温、高圧 転化(合成)装備であつて、供給流入口から 導入された少なくとも2種の供給流のために 複数の通路を設けること;プロセス流が第1 無媒体を通過後供給流の一種と間接熱交換を 行ない得るように、上記通路の一の内部に中 間熱交換器を設けること;及び上記熱交換器 を上記触媒体の一の中心に配置することを特 彼とする前記委備。

- 7. 熱交換器が第1触媒床の中心に配置される、 特許請求の範囲期6項記載の装置。
- 8. 転化装置外郭を通過し、第2供結流と合流 される第3供給流を導入するための入口及び 連断を有する、特許訥沢の範囲梁6項叉は第 7項記載の装置。
- 9. 第2 歴媒 床 通過後のブロセス流と第3 供給 流との間接熱交換を行なうための第2 熱交換 器を有する、特許請求の範囲第8項記載の装 値。
- 10. 熱交渙器に導入される前に、第1供給流が

3

選転条件下では20体積多以下であり、普通には15~18体積多の範囲にあるからである。 従つて、転化装置を出た合成ガス製品流から大部分のアンモニアを除去した後、残存纏度のア ンモニアを含有する合成ガス流を転化装置に循環させ、新規供給の合成ガスとともに再使用するのが通例である。

しかしながら、合成カスを圧縮し、循環させるために必要とされるエネルギーコストはアンモニア製造において重要な囚子であるから過する合成ガスの単位体積当りのアンモニアの製造を増加させるととができれば、エネルギーストを著しく節波することとなるのである。換字すれば、触媒床を出た合成ガス製品流中の成すれば、触媒床を出た合成ガス製品流中の成プロセスの経済性にとつて重要なことである。

アンモニアの合成は、発熱反応であるから、 合成ガスの温度は、それが触媒床を通過する間 に上昇する。そして上記温度が上昇すると、平 外郭に沿つて通過する、特許請求の範囲第6 項又は第1項記載の装置。

11. 各種供給流を転化装置の軸上の位置で合体 させる、特許請求の範囲第6項、第7項、第 8項、第9項叉は第10項記載の装置。

3. 発明の詳細な説明

本発明は、高温、高圧下にアンモニアを合成するための方法及び装飾に関する。

アンモニアの合成は、 3 部の水素と 1 部の窒素から基本的に破成される合成ガスプロセス流を隔温、高圧下に運転されるアンモニア転化で設けて、その中に配置された ― X はそれれている。しかしながら、合成ガス中の水素と窒縮をしたが、アンモニア合成に必要なにないである。しかしても、合成に必要なにでは、アンモニアの治療になったが、では、水素と窒素とを化学量論的に含む合成ガス中の完全を変素とを化学量論的に含む合成ガス中のアンモニアの平衡温度は、過常用いられる

部分的に反応した合成ガスの希状化は、間接 冷却による冷却法により避けることができ、こ の目的のため、1個又はそれ以上の熱交換器が、 転化器中の触媒保内又は2以上の分離触媒保の 間に間接的に組み入れられている。このように して、冷却用合成ガスが、上記熱交換器を循環 するととにより、冷却が可能となり、冷却合成 ガスもこれにより加熱され、アンモニア合成プロセスに用いられる。上記熱交換器に用いられる る冷媒は、圧力水であつても良く、この圧力水 は、その後熱気生成に用いられる。

しかしながら、間接冷却方法は、現在迄工業的に広く用いられているとは言えない。その主な期田は、熱交換器及び該熱交換器に冷燥を送り、該無交換器から冷凝を取り出すための運結管を無難円に組み入れるためには、スペースが必要となるからである。特に間接無交換が蒸気生成に基づく場合には、冷却水を転化軽量外郭(Shell)を介して外部蒸気生成器と連絡させねばならないので、かなり複雑な装置が必要となる。

本発明者らは、上記問題を解決するため拠々 設計した結果、ここに、スペースを殆んど必要 とせず且つ極めて操作の容易な熱交換器を用い て、プロセス用合成ガスを触媒床間で冷却用合成 カスと間接的に熱交換して冷却する、新規を方

- (a) 転化装置の外表面を構成し、実質上円簡型 の転化装置外郭、
- (b) 同心円内部 多孔壁、同心円外部 多孔壁、及び前記多孔壁に固定されている2つの向い合つた触媒アレートとの間に設置され、合成ガスプロセス流を放射状に通過せしめる第1
- (c) 第1触鉄床の軸の一直線上にその軸を有し、 第1触媒床を通過後の合成ガスプロセス流を 放射状に逃過せしめる、第1触媒床と同様の 形状を有し、第1触媒床と同様に設置された 第1触媒床よりも床長が大なる第2触媒床、
- (d) いずれかの触媒床の内部多孔壁の内部中心 に設置され、合成ガスプロセス流を合成ガス 交換流を用いる間接熱交換により冷却する中 間熱交換器及び
- (e) 各億合成ガス供給流用の入口及び第1供給 流を駆化装置の軸上の位置で、上記熱交換器 を出た交換流と合体せしめ、更にプロセス流 温度を調整するためのバイバス流として働く

法及び装置を見出した。

すなわち本発明は、高温、高圧下にアンモニアを合成するための方法を提供するものであり、、本発明のこの方法は、以下の工程を包含するものである。

- (a) 転化器外郭を冷却するために、最初に外郭
 施として用いられる台成ガス供給流、中間熱
 交換器を冷却するために、交換流として用い
 られる台成ガス供給流及びプロセス流の温度
 を調整するためにバイバス流として用いられ
 る台成ガス供給流を触媒床の共通軸に沿つた
 位置で台体させて、プロセス流を得る工程及
 ひ
- (D) 一定温度に保ちながら、上記プロセス流をして放射状に(半径方向に)第1触媒床を通過せしめ、次いで中間熱交換器を通過せしめ、更に放射状に第2触媒床を連過せしめる工程更に高温、高圧下にアンモニアを合成する上記方法を実施するための本発明の転化装置は、主要構成部分として以下のものを包含する。

第2供給流と転化装成内で合体せしめるため の手段

以下図面に基づき本発明を詳説する。

本発明の転化装置の主要な標成部分は、第1 触媒床 2 1、第2 触媒床 2 2、いずれかの触媒 床の内部中心に組み入れられた中央熱交換器 41 及び他の触媒床の中心部を通つて伸びている中 央移送管 4 2 である。との中央移送管 4 2 は、 一の供給流を移送するために働く。

第1図及び第6図に示された、転化装置外郭の底部にある底部熱交換器61は、本発明の転化装置の主要構成部分ではなく、第2図、第3図、第4図及び第5図に示すように場合により省略しても良い。

転化装置の主要部分及びもしあるならば付属 底部熱交換器 6 1 の点検、保守のための解体を 容易にするために、転化器外郭 1 1 は、除去可能な外郭蓋 1 6 を有するものであると良い。

2つの触媒床21及び22は、一直線上に共 連軸の回りに配置される。この2つの触媒床は、 この軸の回りに中央円筒空間を有する。中央熱 交換器41は、一方の触媒床の円筒空間内に組 み入れられており、又中央移送管42は、他の 触媒床の円筒空間内に組み入れられている。

第1触媒床21は、環状であり、2つの同心 円多孔壁である内壁23及び外壁24の間にある。とれら多孔壁は、下端で、触媒プレート25 に固定されており、この触媒プレート25は、

触媒床22で必要とされる。従つて、第2触媒 床22は、第1触媒床21よりも長くする必要 がある。

1...

中央移送質 4 2 は、第 2 触薬床 2 2 の中央円筒空間に組み入れられ、交換流を中央熱交換器 4 1 に移送する役目をする。中央移送管 4 2 と内部多孔壁 2 7 との間には、プロセス流を第 2

第1 無媒床 2 1 中の触媒を保持する役目をしている。これらの多孔壁は、上端で触媒プレート 2 6 により固定されており、該触媒プレート 2 6 は、第1 触媒床 2 1 を封鎖し、同時に弱 2 触媒

侍謂昭52— 109499(4)

床の触媒を保持する役目をする。第 1 触媒 床21 における触媒の充填及び排出を容易にするため、

(removable lids 第1図には示されていない。) が設備され、この蓋は、第2触媒床が空のとき

触媒プレート26として、除去可能な蓋

開放される。

現1 触媒床 2 1 と同様に、第 2 触媒 床 2 2 も 遠状で、 2 つの同心円内部多孔壁 2 7 と外部多 孔壁 2 8 の間に存在する。これら多孔壁は、下 端で触媒 ブレート 2 6 に固定されており、上端 で触媒 ブレート 2 9 に同定されている。触媒 ブレート 2 9 は、触媒の充塡、排出時には完全に 取り除きが可能であるか又はその部分が崩かれ

最適プロセス条件を得るためには、第1触媒 床21で必要とされるよりも多量の触媒が第2

触媒床22に受け入れるための環状空間53がある。

各供給流用通路は、態媒床の共通軸にある点45で合流する。との点45から、合成ガス流は、放射状通路 (radial passage) 46により外方向に放射状に(外部半径方向に)向けられ、第1触媒床21の外側に達する。放射状通路46

は、第 1 触媒床 2 1 に導入されたとき、合成ガスに温度差が認められないように供給合成ガス 流を混合する働きを有する。

.

第2図、第3図、第4図、第5図及び第6図 は、本発明の転化装置の他の具体例を示すもの である。そして、第2回、第3回、第4回及び 第5図においては、第1図に示されている底部 熟交換器 6 1 が省略されており、又第 5 図及び 第6図においては、第2触媒体22を通過する 流れの方向が前記とは逆に内側方向になつてい る。更に各構成部分の位置が、第1図と対比し 変動しているから、装置内の供給流用の入口の 再配置及び合成ガス流用の通路の変更が必要と なる。しかしながら、転化装置の主要構成部分 及びこれらの機能は、不変であり、すべての図 面において、同一の数字は、同様の構成部分を 示すために用いられている。それ故に、第2四、 第3図、第4図、第5図及び第6図の説明は、 第1図と顕著に異なる点を中心にして述べると ととする。

. 3

触媒保22の上部に設置され、第1触媒保21 は、触媒プレート26により固定され、触媒保 レート29により封鎖されており、他方第2触 媒保22は、触媒プレート25により固定され、 触媒プレート26により封鎖されている。他の すべての点においても触媒プレート25.26及び 29は、第1回におけると同一の機能を有する。 中央熱交換器41は、第1触媒保21の高程対 的位置の変更が各種合成ガス用の過路を単純化 し、その結果環状空間51を提供するための板 32は必要でなくなり省略されるととが第4図 より明らかである。

第5図においては、第1触媒床21、 部2触 媒床22及び中央熱交換器41の相対的位置は、 第4図におけると同様であるが、各種合成ガス 流の通路の再配置を行ない、プロセス流が第2 触媒床22内において内側に流れるように、す なわち環状空間54から第2触媒床22を経由 して環状空間53に移行するようにした。

第3図と解2図との唯一の相違は、第3図において、中央無交換器41が第2触媒狀22の高さのところに組み入れられていることであり、このととは、外郭流が中央無交換器41を直接通し、交換流として働き、他方中央移送管42は、中央無交換器41との間、力量ででである。そして、その結果、環状空間53は、内壁23と中央移送管42との間に位置し、又環状空間52は、内壁23と中央移送管42との間に位置することとなる。

第4図においては、第1触媒床21は、第2

1

このことは、特に第4図の独媒プレート26が、第5図においては、第1触媒床21と第2触媒床22との間に通路を提供するため、2つの別個の触媒プレート26a及び26Dに慢き摂わる必要がある。同様に第4図において省略された環状板32を第5図においては挿入し、第1触媒床21の回りに環状空間51を設けている。

最後に第6図に示した具体例は、第6図において底部無交換器61が設置されている他は第5図に示したものと実質的に類似している。

第5図及び第6図に示した転化装置の具体例。においては、2つの触媒床21と22の間に通路を提供するために別個の触媒ブレート26a及び26Dを存在せしめたが、これにより、点検、保守又は触媒交換のため転化装置から第1触媒床、1を中央機交換器41とともに取り出すこともできる。

高温、高圧でアンモニアを合成する本発明の 方法を第1図~第6図に示された転化装置に基づいて、以下に概説する。

特別昭52-- 109499(6)

2 つの触媒床を通過する合成ガスのプロセス 流は、2叉はそれ以上の合成ガス供給流を合体 させることにより得られる。そして合体される 合成ガス供給流は、入口12から導入される外 郭流、入口13から導入される交換流及び入口 14から導入されるバイパス流である。底部熱 交換器が存在しない場合には、外郭流は、後に 交換流として供せられ、交換流用の入口13は 省略しても良い(第2四、第3回、第5回)が、 たとえば部熱交換器が存在しなくても、外郭流 に供する供給流と交換流として供する供給流と を別個に供給することが、操作にフレキシビリ ティーを持たせるために好ましい(第4図)。 底部無交換器が存在する場合には必ず、外郭流 として供する供給流と交換流として供する供給 流とを別個に供給するととが必要となる(第1 図、第6図)。

各種供給ガス流の流速及び温度を適当に開整することにより、第 1 触媒床に充填される触媒に受求される温度に設定された合成ガスプロセ

فقوية

スの組成は、製品流の組成及び本実施例 1 の関連データとともに装 1 に示されている。転化装置は、約 2 7 0 kg/cm² g の圧力で運転される。

約120℃の温度を有する、151,480N
m³/arの合成ガス外郭流を入口12から導入する。外郭流は、先ず葉状空間55を通過し、転 化装置外郭を適度に冷却に、極度に高温となるの後外郭流はし、低度部熱交換器61.に大り、後に出口15から転化装置を出る。約120℃のに入り、後に出口15から転化表約120℃の温度を有する、191,450Nm³/arの合成ガスで、と間接熱交換と150Nm³/arの合成ガスで、中央熱交換器41に入り、第2を接て、中央熱交換器41に入り、第2を換器41で、東深を合力がある。交換器41で、反応温度に近接と1からの外郭流と合体する。

約120℃の温度を有する、40,000 Nm³/nr の合成ガスパイパス流は、入口14から導入さ

吳應問 1

アンモニア 1,000メートルトン/日の製造 能力を有し、第1図に示した転化装置から成る アンモニアプラントを用いて、本発明の万法を 実施する。

2つの触媒床は、粒径 1.5 ~ 3 mmのアンモニア合成触媒で充填される。触媒体模は、第 1 触 採床 2 1 で 1 2 m³、第 2 触媒床 2 2 で 2 9 m³である。谷融媒床に供給され、排出される合成ガ

100

れ、触媒 床の共通軸に沿つた位置で、外郭流及び交換流と合体し、560℃の温度を有する、382,950 Nm³/hr の合成ガスプロセス流となる。プロセス流を構成する、5種の台成ガス流の相対動は、運転中に調整され、第1触媒 床21の入口で所認の温度となる。

実施例2~6

本発明に従つてアンモニア合成を行なつた実

表 1

施例2~6の結果は、張1に示されている。実施例2~6は、第2図~第6図に示された転化 装置を用いた以外は、実施例1と同様に行をわれた。

実施例 No	1 6										
転化装置	第1図~第6図に示したもの										
転化装置の製造能力 (メートルトン/日)	1 , 0 0 0										
照條体積(m³)											
弟 1 触 媒 床	1 2										
第 2 触 媒 床	1 9										
供給流及び製品流の組成 (体	稍多)										
供給流(第1 触媒床入口)	H ₂ 63.4										
	H ₂ 21.1										
	NH ₃ 5.5										
	不活性カス 12.0										
供給流(第1触媒床出口)											
	H ₂ 18.1										
	NH ₃ 14.4										
	不活性ガス 15.5										
製品流 (第2触媒床出口)	H ₂ 48.9										
	H ₂ 16.3										
	NH 3 20.8										
	不活性ガス 14.0										

表 2

			寒	施	1	列	No	٠.					1			2			3	5		4	1			5			6
			図	(III)		N	· ·						1			2				5		4	ı			5		-	6
流	鬒		Nm ³ /	'n																				1			\top		
	外	F ,	犹									151	,48	0	32	2,9	3 0	32	2,9	30	5 2	2,5	30	3 2	2.	930		13	1,480
	交	换	饭								·	191	,45	٥														211	1,4 5 0
	バ	1	パスを	秖								4 (0.0,0	0	6	0,0	0 0	6	0,0	000	1	0,0	00		0,	000)	4 (0,000
	総	プロ	ロセス係	ì(邿	1 /4	出媒	床	入	П.)	382	2,9 3	0	3 8	2,9	3 0	38	2,5	30	38	2,9	30	38	3 2,	9 3 (,	382	2,930
	製	品	禠	(転1	七季	ć (f	甜)		328	3,09	0	3 2	8,0	9 0	32	8,0	90	3 2	8,0	90	5 2	8,1	9 (3	328	3,090
温	度		ъ																										
	供	給	流	(磁 1	七卦	を協	入)			1 1	a		2	3 7		2	2 3 7		2	3 7		:	2 5 7	,		150
	ブ	ㅁ ·	セス流	(绵	1 作	以媒	床	入	П)		3 6	٥		5	6 O		3	560		3	5 6 0			3 6 0	,		360
			n	(沸	1 角	上架	床	出	П)		5 2	0		5	20		5	520	ļ	5	20		;	5 2.0			520
			*	(第	2 角	以解	床	入	□)		39	0		3	90		3	590		3	90			390			390
			,	(第	2 角	虫妹	床	出	n :)		47	2		4	7 2		4	172		4	72			472	2		472
			*	(転化	七妻	き置	出	П)			3 4	5		4	72			172	-	4	72			472	2		385

実施例1~6から明らかなように、底部無交換器61は、製品ガスが転化装置外郭の田口15から転化装置を出る前に、製品ガスを冷却する働いたりの冷却がなければ、製品ガスがかなりの高温で転化装置外郭から排出するがになる。そしてこの対象性材料をより注意と、経代の対象性があるとは、経過の熱を制用するのが設ましいは、底部無交換器は省略される。にないては、底部への機能は省略されている。

本発明の方法及び装置の大きな性別的利点は、 無媒尿を測過した合成ガスの単位体積当りのア ンモニア含質が高い製品ガスを得ることができ ることである。このような高アンモニア含量の 製造ガスを得ることができるのは、2つの触媒 床間の合成ガスブロセス流を希釈することなく、 冷却できること及び各触媒尿の入口のブロセス 流の温度を所望の温度に設定することができる

アンモニア濃度 5.5 多の合成ガスが 3 6 0 ℃の 温度で第 1 触媒床に導入される。 ブロセス流が 第 1 触媒床を速過している間に、 との 2 つのバ ラメーターは、実験 1 ー 2 に沿つて変動し、 その結果係の出口における温度は 5 2 0 でとなり、 アンモニア濃度は、 間接無 交換により 冷却されるが、 これは、 2 つのバラメーターが実験 2 ー 3 a に沿つて変動することによっていまれる(アンモニア 濃度は一定に保たれる)。

明2触殊尿の入口における温度は390とであり、アンモニア強度は、14.4%である。

ブロセス派が弱 2 触媒 床を 過過している間に 2 つのパラメーターは、 実験 3 a ー 4 に沿つて 変動し、第 2 触媒 床の出口の温度は 4 7 2 とと なり、アンモニア 濃度 b 2 0.8 多となる。

第1図において点線で示された他の例は、ブロセス流を触媒床間で間接熱交換するととによ り冷却する代りに、直接冷却により冷却を行な ととに基づく。アンモニア合成触媒を最適な状態で働かせるために、各触媒床の温度は、互いに別価に選定する必要があり、とのような温度の選定は、本発明の方法及び装置においては、各種の合成ガス流の相対速度を種々変化させるととができるので、可能である。

本発明の方法及び装配の上記利点は、合成ガスプロセス流が2つの触媒床を適適する時の温度とアンモニア濃度の変化を示す第7図により、更に明らかなものとなる。第7図において、線Aは、実施例1で用いられた圧力条件と合成ガス濃度条件下における熱力学的平衡選度を示す。線Bは、上記理論線に対応して平衡を10℃だけ変動させた場合の線を示し、この線は、実際に得られている。

第7図の残りの線は、合成ガスプロセス流が 触媒床を通過した場合の合成ガスプロセス流の 温度及びアンモニア濃度の変化を示すものであ る。実験で示される第1の例は実施例1の条件 下にアンモニア合成を行なつた場合に対応し、

得7図より本発明の方法及び装置を使用してアンモニア合成を行なうことにより、アンモニア合成に利点がもたらされることが例証された。本発明の実確により、触媒床を通過する合成ガスの単位体積当りのアンモニア製造量が著しく

増大することが明らかとなつた。

4.図面の簡単な説明

第1図~第6図は、本発明の転化装置の具体 例の縦断面図である。

第7図は、本発明の方法と公知の方法とのア

ンモニア製造量の比較圏である。

ととに上記第1図~第6図において示された 下記符号は以下の意味を有する。

11 · · · 転化装置外郭

12 · · · 外郭流供給用入口

15 · · · 交換流供給用入口

14 ・・・バイベス流供給用入口

15 · · · 製品流出口

16 · · · 外郭蓋

21 · · · 第 1 触 媒 床

22 · · · 第 2 触媒床

25 · · · 内部多孔壁

24 · · · 外部多孔盤

25 ・・・ 触媒プレート

26 ... "

26a · · · 触媒ブレート

26b · · · /

27 · · · 内部多孔蟹

28 · · · 外部多孔壁

29 ・・・ 触媒プレート

31 · · · 円筒板

32 ... "

41. · · · 間接熱交換器

42 · · · 移送質

43 · · · 平行管

51 · · · 環状空間

52 ... /

53 ... #

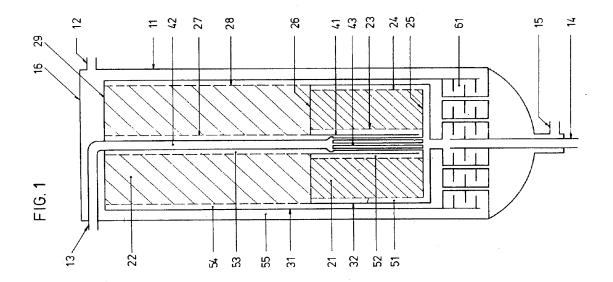
54 ... *

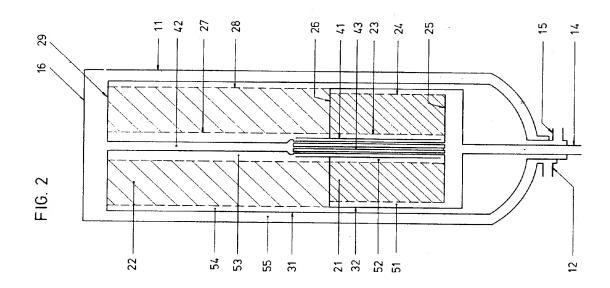
55 ...

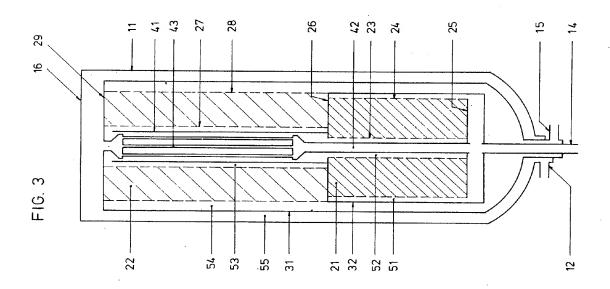
61 · · · 底 部 熱 交 換 器

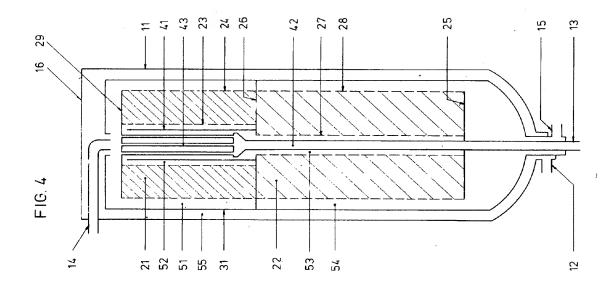
代理人 江 崎 光 好 切 沙

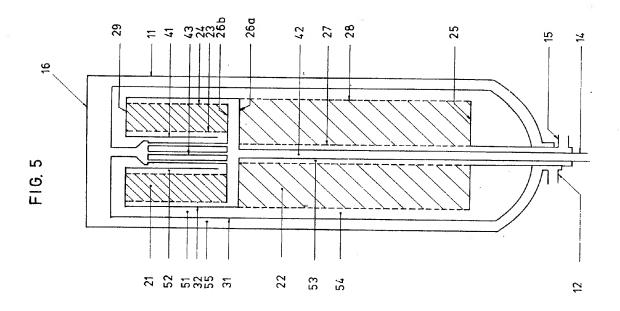
代理人 江 崎 光 史

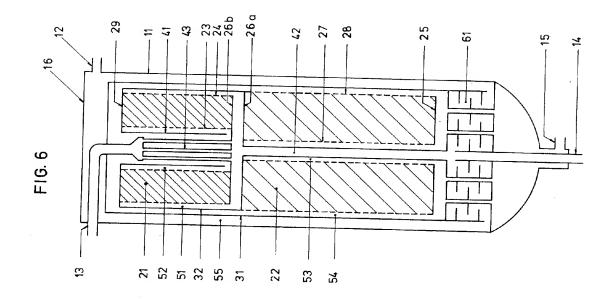












F1G. 7

